

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2001-185455

(43)Date of publication of application : 06.07.2001

(51)Int.Cl.

H01G 9/02
H01G 9/155

(21)Application number : 11-366540

(71)Applicant : JAPAN VILENE CO LTD
POWER SYSTEM:KK

(22)Date of filing : 24.12.1999

(72)Inventor : KIMURA NORITOSHI
KOBAYASHI TAKESHI
KIMURA KOJI
SHIMIZU MASAHIKO**(54) METHOD OF MANUFACTURING ELECTRIC DOUBLE LAYER CAPACITOR****(57)Abstract:**

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a method by which an electric double layer capacitor having a high breakdown voltage, high energy density, or a high electrostatic capacity can be manufactured easily and in a smaller space.

SOLUTION: The method of manufacturing for the electric double layer capacitor according to the present invention, after having inserted an electrode group which is assembled from collection electrodes, electrodes, and separators and an electrolyte into a case, in the method of manufacturing for the electric double layer capacitor to seal the case, uses a fiber sheet which involves a fiber comprising a fibril and a resin that a melting temperature or a carbonization temperature is equal to or more than 300° C and a fine fiber comprising the resin in which fineness is equal to or less than 0.45 dtex (decitex) and a softening temperature is equal to or more than 200° C as the separators. In addition, after having assembled the electrode group, the collection electrodes, the electrodes, and the separators are dried at not less than a boiling point of water and at a temperature which is lower than the softening temperature of the resin whose softening temperature is lowest of resins composing the fiber to be contained in the separators.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 29.03.2002

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2001-185455

(43)Date of publication of application : 06.07.2001

(51)Int.Cl.

H01G 9/02

H01G 9/155

(21)Application number : 11-366540

(71)Applicant : JAPAN VILENE CO LTD
POWER SYSTEM:KK

(22)Date of filing : 24.12.1999

(72)Inventor : KIMURA NORITOSHI
KOBAYASHI TAKESHI
KIMURA KOJI
SHIMIZU MASAHIKO

(54) METHOD OF MANUFACTURING ELECTRIC DOUBLE LAYER CAPACITOR

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a method by which an electric double layer capacitor having a high breakdown voltage, high energy density, or a high electrostatic capacity can be manufactured easily and in a smaller space.

SOLUTION: The method of manufacturing for the electric double layer capacitor according to the present invention, after having inserted an electrode group which is assembled from collection electrodes, electrodes, and separators and an electrolyte into a case, in the method of manufacturing for the electric double layer capacitor to seal the case, uses a fiber sheet which involves a fiber comprising a fibril and a resin that a melting temperature or a carbonization temperature is equal to or more than 300°C and a fine fiber comprising the resin in which fineness is equal to or less than 0.45 dtex (decitex) and a softening temperature is equal to or more than 200°C as the separators. In addition, after having assembled the electrode group, the collection electrodes, the electrodes, and the separators are dried at not less than a boiling point of water and at a temperature which is lower than the softening temperature of the resin whose softening temperature is lowest of resins composing the fiber to be contained in the separators.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 29.03.2002

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's
decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2001-185455

(P2001-185455A)

(43)公開日 平成13年7月6日(2001.7.6)

(51)Int.Cl.⁷

識別記号

F I

テームコード*(参考)

H 0 1 G 9/02
9/155

H 0 1 G 9/00

3 0 1 C
3 0 1 Z

審査請求 未請求 請求項の数2 O L (全 6 頁)

(21)出願番号 特願平11-366540

(22)出願日 平成11年12月24日(1999. 12. 24)

(71)出願人 000229542

日本パイリオン株式会社

東京都千代田区外神田2丁目14番5号

(71)出願人 594086288

株式会社パワーシステム

神奈川県横浜市金沢区福浦1丁目1番地の
1

(72)発明者 木村 文紀

東京都千代田区外神田2丁目14番5号 日
本パイリオン株式会社内

(74)代理人 100102370

弁理士 熊田 和生

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 電気二重層キャパシタの製造方法

(57)【要約】

【課題】 簡単にしかも場所をとることなく、耐電圧の高い電気二重層キャパシタ、エネルギー密度の高い電気二重層キャパシタ、或いは高容量の電気二重層キャパシタを製造することのできる方法を提供すること。

【解決手段】 本発明の電気二重層キャパシタの製造方法は、集電極、電極及びセパレータから組み立てた電極群と電解液とをケースに挿入した後、前記ケースを封緘する電気二重層キャパシタの製造方法において、前記セパレータとしてフィブリルを有しかつ融解温度又は炭化温度が300℃以上の樹脂からなる繊維と、繊維度が0.45 d t e x (デシテックス)以下かつ軟化温度が200℃以上の樹脂からなる細繊維とを含む繊維シートを使用し、前記電極群を組み立てた後に、水の沸点以上で、前記セパレータに含まれている繊維を構成する樹脂の中で最も軟化温度の低い樹脂の軟化温度よりも低い温度で、集電極、電極及びセパレータを乾燥する方法である。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 集電極、電極及びセパレータから組み立てた電極群と電解液とをケースに挿入した後、前記ケースを封緘する電気二重層キャパシタの製造方法において、前記セパレータとしてフィブリルを有しかつ融解温度又は炭化温度が300℃以上の樹脂からなる繊維と、繊維度が0.45 d t e x（デシテックス）以下かつ軟化温度が200℃以上の樹脂からなる細繊維とを含む繊維シートを使用し、前記電極群を組み立てた後に、水の沸点以上で、前記セパレータに含まれている繊維を構成する樹脂の中で最も軟化温度の低い樹脂の軟化温度よりも低い温度で、集電極、電極及びセパレータを乾燥することを特徴とする、電気二重層キャパシタの製造方法。

【請求項2】 前記セパレータを構成するいずれの成分も熱融着していないことを特徴とする、請求項1に記載の電気二重層キャパシタの製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は電気二重層キャパシタの製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】電気二重層キャパシタは比較的大きな容量をもち、しかも長寿命かつ急速充放電が可能であることから、電源の平滑化、ノイズ吸収などの従来の用途以外に、パーソナルコンピュータのメモリーバックアップ電源、二次電池の補助又は代替に用いられてきており、近年においては電気自動車用の二次電池としての用途が期待されている。この電気二重層キャパシタは電解液中に1対の電極が浸漬された構造を有している。この電気二重層キャパシタに電圧を印加すると、電極と反対符号のイオンが電極の近傍に分布してイオンの層を形成する一方、電極の内部にはイオンと反対符号の電荷が蓄積される。次いで、電極間に負荷をつなぐと、電極内の電荷が放電されると同時に、電極近傍に分布していたイオンは電極近傍から離れて中和状態に戻る。この電気二重層キャパシタにおいては、1対の電極が接触してしまうと、電極近傍においてイオンの層を形成することが困難になるため、通常1対の電極間にセパレータが配置されている。このような構造からなる電気二重層キャパシタ、例えば電解液が非水溶液からなる非水溶液系電気二重層キャパシタは、次のようにして製造することができる。

(1) 各々の材料、つまり集電極、電極及びセパレータをそれぞれ加熱減圧乾燥した後、これら材料を組み立てて電極群を作製する。次いで、ケースに前記電極群を挿入した後、電解液を減圧含浸する。その後、前記ケースを封緘して非水溶液系電気二重層キャパシタを得ることができる。この方法によれば、耐電圧の高い電気二重層キャパシタやエネルギー密度の高い電気二重層キャパシタを製造することができる。しかしながら、この方法に

においては個々の材料をそれぞれ加熱減圧乾燥する必要があるため製造が煩雑であったり、複数の乾燥装置を必要とするため広い場所を必要とするなどの問題があった。電気二重層キャパシタの別の製造方法として、(2) 各々の材料、つまり集電極、電極及びセパレータを組み立てて電極群を作製した後、この電極群を加熱減圧乾燥する。次いで、ケースに前記電極群を挿入した後、電解液を減圧含浸する。その後、前記ケースを封緘して非水溶液系電気二重層キャパシタを得る方法がある。この方法によれば、電極群を形成した後に加熱減圧乾燥する方法であるため製造を簡素化することができ、乾燥装置を少なくすることができるため広い場所を必要としない。しかしながら、電極群を構成する材料、つまり集電極、電極及びセパレータの間に耐熱性のバラツキがあるため、各々の材料を劣化させることのない温度で加熱減圧乾燥することになるが、このような温度で加熱減圧乾燥しても、十分に水分を除去することができないため、耐電圧の高い電気二重層キャパシタやエネルギー密度の高い電気二重層キャパシタを製造することが困難であった。逆に、十分に水分を除去できる温度で加熱減圧乾燥すると、セパレータ（例えば、ポリプロピレン繊維製セパレータやセルロース繊維製セパレータ）が溶融したり炭化してしまうなど劣化が著しいため、短絡してしまうなど、セパレータとしての用をなさなくなるという問題があった。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】本発明は上記の問題点を解決するためになされたものであり、簡単にしかも場所をとることなく、耐電圧の高い電気二重層キャパシタ、エネルギー密度の高い電気二重層キャパシタ、或いは高容量の電気二重層キャパシタを製造することのできる方法を提供することを目的とする。

【0004】

【課題を解決するための手段】本発明の電気二重層キャパシタ（以下、「キャパシタ」という）の製造方法は、集電極、電極及びセパレータから組み立てた電極群と電解液とをケースに挿入した後、前記ケースを封緘する電気二重層キャパシタの製造方法において、前記セパレータとしてフィブリルを有しかつ融解温度又は炭化温度が300℃以上の樹脂からなる繊維と、繊維度が0.45 d t e x（デシテックス）以下かつ軟化温度が200℃以上の樹脂からなる細繊維とを含む繊維シートを使用し、前記電極群を組み立てた後に、水の沸点以上で、前記セパレータに含まれている繊維を構成する樹脂の中で最も軟化温度の低い樹脂の軟化温度よりも低い温度で、集電極、電極及びセパレータを乾燥する方法である。本発明者らは鋭意研究の結果、集電極、電極及び特定のセパレータから電極群を組み立てた後に、水の沸点以上で、前記セパレータに含まれている繊維を構成する樹脂の中で最も軟化温度の低い樹脂の軟化温度よりも低い温度で長

時間（例えば5時間以上）乾燥しても、特定のセバレータを劣化させることなく、十分に水分を除去することができるため、簡素にしかも場所をとることなく、耐電圧の高い電気二重層キャパシタ、エネルギー密度の高い電気二重層キャパシタ、或いは高容量の電気二重層キャパシタを製造できることを見出したのである。

【0005】前記セバレータを構成するいずれの成分も熱融着していないと、皮膜を形成しておらずイオン透過性に優れているため、より高容量の電気二重層キャパシタを製造することができる。

【0006】

【発明の実施の形態】本発明のキャパシタの製造方法における特徴は、特定のセバレータを使用すると、電極群を形成した後に乾燥（例えば、加熱減圧乾燥）しても、特定のセバレータはその熱によって劣化を生じることなく、十分に水分を除去することができるため、簡素に、広い場所をとることなく、耐電圧の高い電気二重層キャパシタ、エネルギー密度の高い電気二重層キャパシタ、或いは高容量の電気二重層キャパシタを製造できる点にある。この特定のセバレータはフィブリルを有しかつ融解温度又は炭化温度が300℃以上の樹脂からなる繊維（以下、「フィブリル繊維」という）と、繊度が0.45d tex以下かつ軟化温度が200℃以上の樹脂からなる細繊維を含む繊維シートからなる。このセバレータはフィブリル繊維のフィブリルが絡んで緻密な構造を採ることができるため、強度的に優れしかも短絡防止性にも優れている。このフィブリル繊維とは、1本の繊維から無数の微細繊維が発生した繊維であり、微細繊維のみから構成されていても良いし、微細繊維に加えて微細繊維が束状になっている部分を含むものであっても良いが、後者のように微細繊維に加えて微細繊維が束状になっている部分を含むフィブリル繊維を含んでいると、強度的に優れ、しかも後述の細繊維との相乗効果により優れたイオン透過性を示すため好適に使用できる。このフィブリル繊維は融解温度又は炭化温度が300℃以上の樹脂から構成されているため、電極群を形成した後に乾燥（例えば、加熱減圧乾燥）しても、その熱によって劣化を生じにくいものである。この融解温度が300℃以上の樹脂としては、例えば、ポリテトラフルオロエチレン、ポリフェニレンサルファイドなどを挙げることができる。また、炭化温度が300℃以上の樹脂としては、メタ系芳香族ポリアミド、パラ系芳香族ポリアミド、ポリアミドイミド、芳香族ポリエーテルアミド、ポリベンツイミダゾール、全芳香族ポリエステルなどを挙げることができる。これらの中でも、メタ系芳香族ポリアミド又はパラ系芳香族ポリアミドは電解液との親和性にも優れているため好適に使用でき、より炭化温度の高いパラ系芳香族ポリアミドがより好適である。なお、「融解温度」とは、JIS K 7121に規定されている示差熱分析により得られる示差熱分析曲線（DTA曲線）か

ら得られる温度をいう。また、「炭化温度」とは、JIS K 7120に規定されている熱重量測定により得られる温度をいう。このようなフィブリル繊維は強度的に優れしかも短絡防止性にも優れているように、繊維シート中、20mass%以上含まれているのが好ましく、50mass%以上含まれているのがより好ましい。他方、後述の細繊維との関係から、95mass%以下であるのが好ましく、90mass%以下であるのがより好ましい。なお、フィブリル繊維は1種類である必要はなく、2種類以上含んでいても良い。このように2種類以上のフィブリル繊維を含んでいる場合には、その合計質量が前記範囲内にあるのが好ましい。

【0007】本発明のセバレータは前述のようなフィブリル繊維に加えて、繊度が0.45d tex以下かつ軟化温度が200℃以上の樹脂からなる細繊維を含んでいるため、イオン透過性に優れた微細孔を形成することができ、しかも電極群を形成した後に乾燥（例えば、加熱減圧乾燥）しても、その熱によって劣化を生じにくいものである。細繊維の繊度が0.45d texを越えると、形成される孔径が大きなものとなり、短絡防止性が著しく悪くなる傾向がある。より好ましい繊度は0.35d tex以下であり、更に好ましい繊度は0.25d tex以下であり、最も好ましい繊度は0.15d tex以下である。細繊維の繊度の下限は特に限定するものではないが、0.10d tex程度であるのが好ましい。なお、この「繊度」はJIS L 1015に規定されているA法により得られる値をいう。この細繊維は軟化温度が200℃以上の樹脂から構成されているため、電極群を形成した後に乾燥（例えば、加熱減圧乾燥）しても、その熱によって劣化を生じにくいものである。この細繊維を構成する樹脂としては、例えば、66ナイロン、ポリエステル系樹脂、アクリル系樹脂、ポリビニルアルコールなどを挙げることができる。これらの中でも、軟化温度が最も高いポリエステル系樹脂からなるのが好ましい。この「軟化温度」とは、JIS K 7121に規定されている熱流束示差走査熱量測定（DSC、昇温速度10℃/分）により得られるDSC曲線における融解吸熱曲線の開始点を与える温度をいう。本発明の細繊維の繊維長は特に限定されるものではなく、繊維シートの態様によって変化する。本発明の繊維シートが好適である湿式不織布からなる場合には、繊維長1～25mm程度であるのが好ましく、3～20mm程度であるのがより好ましい。この繊維長はJIS L 1015のB法（補正ステープルダイアグラム法）により得られる長さをいう。細繊維の断面形状は円形である必要はなく、非円形（例えば、長円、楕円、星型、YやXなどのアルファベット型、プラス型など）であっても良い。このような細繊維はイオン透過性に優れるように、繊維シート中、5mass%以上含まれているのが好ましく、10mass%以上含まれているのがより好まし

い。他方、前述のフィブリル繊維との関係から、80mass%以下であるのが好ましく、50mass%以下であるのがより好ましい。なお、細繊維は1種類である必要はなく、2種類以上含んでいても良い。このように2種類以上の細繊維を含んでいる場合には、その合計質量が前記範囲内にあるのが好ましい。

【0008】本発明のセバレータは前述のようなフィブリル繊維及び細繊維を含む繊維シートからなるが、繊維シートの態様は、例えば、織物、編物、不織布或いはこれらの複合体であることができる。これらの中でも、厚さを薄くすることのできる不織布であるのが好ましく、繊維の均一分散性に優れており短絡が発生しにくく、信頼性の高い湿式不織布からなるのがより好ましい。本発明のセバレータを構成する成分（例えば、フィブリル繊維、細繊維など）はいずれも熱融着していないのが好ましい。このように熱融着していないことによって皮膜を形成していないため、イオンの透過性に優れている。また、セバレータの厚さはイオン透過性に優れるように、50 μ m以下であるのが好ましく、15~45 μ mであるのがより好ましい。なお、セバレータの面密度は5~30g/m²であるのが好ましく、見掛密度は0.1~1.2g/cm³であるのが好ましい。

【0009】本発明のセバレータは常法により繊維シートを製造し、その繊維シートをセバレータとして使用することができる。例えば、好適である湿式不織布は次のようにして製造することができる。まず、少なくともフィブリル繊維と細繊維とを用意する。このフィブリル繊維及び細繊維はいずれも市販されているため、容易に入手することができる。次いで、これらの繊維を使用し、常法の湿式法（例えば、水平長網方式、傾斜ワイヤー型短網方式、円網方式、又は長網・円網コンビネーション方式など）により繊維ウエブを形成する。この繊維ウエブを形成する際、繊維の均一な分散状態を維持するために増粘剤を加えたり、水と繊維との親和性を高めるために界面活性剤を加えたり、攪拌等によって生じる気泡を取り除くために消泡剤を加えても良い。次いで、この繊維ウエブを乾燥し、水分を除去して湿式不織布を得ることができる。なお、乾燥温度は繊維ウエブを構成する繊維が融解しない温度で実施する。このように製造した湿式不織布はセバレータとして使用することができるが、この湿式不織布をカレンダーなどによって圧力を加えるのが好ましい。このように圧力を加えることによって、厚さを調整したり、厚さを薄くしたり、厚さを均一化したり、フィブリル繊維のフィブリルを進行させてより緻密なものとしたり、或いはフィブリル繊維のフィブリルを密着させることにより強度を向上させることができる。なお、圧力を加える際には加熱しても良いし加熱しなくても良いが、加熱すると前記効果を発揮しやすい。但し、構成繊維が溶融する程度に加熱すると、皮膜が形成されてイオン透過性が悪くなるため、加熱する場

合には不織布（セバレータ）に含まれている繊維を構成する樹脂のうち、最も低い融解温度を有する樹脂の融解温度よりも20℃以上低い温度で加熱する必要がある、より好ましくは30℃以上低い温度で加熱する。

【0010】本発明のキャパシタの製造方法の別の特徴は、前述のようなセバレータ、集電極及び電極から電極群を組み立てた後に、水の沸点以上で、前記セバレータに含まれている繊維を構成する樹脂の中で最も軟化温度の低い樹脂の軟化温度よりも低い温度で乾燥する点にある。このような温度で電極群を乾燥した場合、従来のセバレータを使用した時にはセバレータを劣化させてしまい、セバレータとしての用をなさなくなる場合が多々あったが、前述のような特定のセバレータを用いた場合には、セバレータがほとんど劣化せず、しかも十分に水分を除去することが可能で、しかもイオン透過性にも優れているため、耐電圧の高い電気二重層キャパシタ、エネルギー密度の高い電気二重層キャパシタ、或いは高容量の電気二重層キャパシタを簡素に製造することができる。なお、乾燥は水の沸点よりも50℃以上高い温度で実施するのが好ましく、60℃以上高い温度で実施するのがより好ましい。また、セバレータに含まれている繊維を構成する樹脂の中で最も軟化温度の低い樹脂の軟化温度よりも20℃以上低い温度で実施するのが好ましく、30℃以上低い温度で実施するのがより好ましい。例えば、特定のセバレータが前述のフィブリル繊維とポリエステル系細繊維からなる場合、乾燥温度は150~220℃程度であるのが好ましく、160~210℃程度であるのがより好ましい。なお、水の沸点はコットレル沸点測定装置によって測定して得られる値をいう。

【0011】本発明のキャパシタの製造方法について簡単に述べる。まず、集電極、電極及び前述のような特定のセバレータを用意する。なお、集電極としては、例えば、アルミニウム薄板、白金薄板などの金属薄板を使用することができ、電極としては、例えば、粒状活性炭に導電剤と接着剤とを混ぜ合わせ、圧粉法、圧延法、塗布法或いはドクターブレード法によって作製されたものを使用することができる。次いで、例えば、集電極、電極、セバレータ、電極、集電極の順に積み重ねることを繰り返したり、このように積み重ねた積層体を巻き上げて電極群を形成する。次いで、電極群を前述のような乾燥条件にて、集電極、電極及びセバレータを同時に乾燥する。次いで、この乾燥した電極群と電解液とをケースに挿入した後、前記ケースを封緘してキャパシタを製造することができる。この電解液としては、例えば、プロピレンカーボネートをテトラエチルアンモニウム・テトラフルオロボレートに溶解させた有機電解液や、プロピレンカーボネートをテトラエチルフォスフォニウム・テトラフルオロボレートに溶解させた有機電解液などを使用することができる。なお、電解液は減圧含浸するのが好ましい。

【0012】以下に、本発明の実施例を記載するが、以下の実施例に限定されるものではない。

【実施例】（セパレータの製造）

（実験例1）バラ系芳香族ポリアミドからなるフィブリル繊維（登録商標：ケブラー、デュボン製、炭化温度：500℃以上）と、ポリエチレンテレフタレートからなる、織度0.11d tex、繊維長3mmの細繊維（融解温度：260℃、軟化温度：253℃、断面：円形）を用意した。次いで、フィブリル繊維と細繊維とを1：1の質量比率で含むスラリーを形成した後、傾斜ワイヤ型短網方式により繊維ウェブを形成した。次いで、この繊維ウェブを温度120℃に設定された熱風循環式乾燥機により乾燥した。次いで、この乾燥した繊維ウェブを温度220℃に設定された一対の熱カレンダーにより押圧（線圧力：4.7kN/cm）して、面密度20g/m²、厚さ25μm、見掛密度0.8g/cm³の押圧湿式不織布、つまりセパレータを製造した。このセパレータを構成するフィブリル繊維は微細繊維が束状になっている部分を含むものであった。また、セパレータを構成する細繊維は多少圧着されているものの、熱融着していないため皮膜は形成されていなかった。

【0013】（実験例2）実験例1の細繊維に代えて、織度0.77d tex、繊維長3mmのポリエチレンテレフタレート繊維（融解温度：260℃、軟化温度：253℃、断面：円形）を50mass%使用したこと以外は、実験例1と全く同様にして、繊維ウェブの形成、乾燥及び一対の熱カレンダーによる押圧を実施して、面密度20g/m²、厚さ25μm、見掛密度0.8g/cm³の押圧湿式不織布、つまりセパレータを製造した。

【0014】（実験例3）実験例1において使用したバラ系芳香族ポリアミドからなるフィブリル繊維を100%使用したこと以外は実験例1と全く同様にして、繊維ウェブの形成、乾燥及び一対の熱カレンダーによる押圧を実施して、面密度が20g/m²、厚さが25μm、見掛密度が0.8g/cm³の押圧湿式不織布、つまりセパレータを製造した。

【0015】（実験例4）実験例1と全く同様にして製造した繊維ウェブを、温度120℃に設定された熱風循環式乾燥機により乾燥した。次いで、この乾燥した繊維ウェブを温度240℃に設定された一対の熱カレンダーにより押圧（線圧力：4.7kN/cm）して、面密度20g/m²、厚さ25μm、見掛密度0.8g/cm³の押圧湿式不織布、つまりセパレータを製造した。このセパレータを構成するフィブリル繊維は微細繊維が束状になっている部分を含むものであった。また、セパレータを構成する細繊維は多少圧着されているものの、熱融着していないため皮膜は形成されていなかった。

【0016】（実験例5）市販されているキャパシタ用のセルロース繊維製セパレータ（面密度：20g/

m²、厚さ：48μm、見掛密度：0.41g/cm³）を用意した。

【0017】（キャパシタの製造）まず、集電極としてアルミニウム薄板、電極として粒状活性炭、カーボンブラック及びポリテトラフルオロエチレンを混ぜて練り上げたもの（圧延法により作製）、及びセパレータとして前述の実験例1～5のセパレータを用意した。次いで、集電極、電極、セパレータ、電極、集電極の順に積み重ねることを繰り返して、それぞれ電極群を形成した。次いで、これら電極群をそれぞれ温度150℃及び200℃で5時間、集電極、電極及びセパレータを同時に乾燥した。次いで、この乾燥した電極群をコインセル型ケースに挿入した後、テトラエチルアンモニウム・テトラフルオロボレーイトをプロピレンカーボネートに溶解させた電解液を減圧含浸した後、前記ケースを封緘してキャパシタを製造した（それぞれキャパシタ1、2、3、4、5）。他方、集電極、電極及び実験例5のセパレータを、それぞれ温度100℃で5時間、200℃で5時間、100℃で5時間乾燥した。次いで、集電極、電極、セパレータ、電極、集電極の順に積み重ねることを繰り返して、電極群を形成した。次いで、この電極群をコインセル型ケースに挿入し、テトラエチルアンモニウム・テトラフルオロボレーイトをプロピレンカーボネートに溶解させた電解液を減圧含浸した後、前記ケースを封緘してキャパシタを製造した（キャパシタ6）。その後、各々のキャパシタ1～6の内部抵抗を測定するとともに、60℃の雰囲気温度下で2.5Vの電圧を印加して、初期、200時間後及び300時間後における静電容量を測定した。これらの結果は表1に示す通りであった。

【表1】

キャパシタ	電極群	乾燥条件	150℃で乾燥した場合		200℃で乾燥した場合	
			初期	200時間後	初期	200時間後
1	集電極	200℃5時間	1.35	1.35	1.35	1.35
2	電極	200℃5時間	1.24	1.24	1.24	1.24
3	セパレータ	200℃5時間	1.24	1.24	1.24	1.24
4	集電極	200℃5時間	1.35	1.35	1.35	1.35
5	電極	200℃5時間	1.24	1.24	1.24	1.24
6	セパレータ	200℃5時間	1.24	1.24	1.24	1.24

【0018】この表1から明らかなように、電極群を組み立てた後に温度150℃で乾燥した場合、キャパシタ1及び4はやや静電容量が低下するものの、内部抵抗も比較的低いものであった。これに対して、キャパシタ2はショート（内部短絡状態）してしまい使用することができないものであり、キャパシタ3は内部抵抗が高いため実際には使用できないものであり、キャパシタ5は静電容量の低下が著しいため使用に耐えないものであ

た。また、電極群を組み立てた後に温度200℃で乾燥した場合、キャパシタ1、4は静電容量の低下が少なく、内部抵抗も低い、実用性の高いものであった。これに対して、キャパシタ2はショート（内部短絡状態）してしまい使用することができないものであり、キャパシタ3はキャパシタ1、4と比較して内部抵抗が高いため使用しづらいものであり、キャパシタ5はショート（内部短絡状態）してしまい使用できないものであった。更にキャパシタ6は良好な静電容量及び内部抵抗を示すものの、個々の材料を別個に乾燥する必要があるため、工程が煩雑で、設備的にも広い場所が必要であった。これに対して、キャパシタ1、4は電極群を組み立てた後に乾燥できるため、工程が簡単で、設備的にも広い場所を必要としないにもかかわらず、キャパシタ6と同等以上の静電容量及び内部抵抗を示す、製造上及び性能上好適なものであった。

*【0019】

【発明の効果】本発明の電気二重層キャパシタの製造方法によれば、集電極、電極及び特定のセパレータから電極群を組み立てた後に、水の沸点以上で、前記セパレータに含まれている繊維を構成する樹脂の中で最も軟化温度の低い樹脂の軟化温度よりも低い温度で長時間（例えば5時間以上）乾燥しても、特定のセパレータを劣化させることなく、十分に水分を除去することができるため、簡素に、場所をとることなく、更には製造設備（例えば、グローボックス）をコンパクト化できると同時に、耐電圧の高い電気二重層キャパシタ、エネルギー密度の高い電気二重層キャパシタ、或いは高容量の電気二重層キャパシタを製造できる。なお、前記セパレータを構成するいずれの成分も熱融着していないと、皮膜を形成しておらずイオン透過性に優れているため、より高容量の電気二重層キャパシタを製造することができる。

フロントページの続き

(72)発明者 小林 剛
茨城県猿島郡総和町大字北利根7番地 日
本バイリーン株式会社内

(72)発明者 木村 浩二
茨城県猿島郡総和町大字北利根7番地 日
本バイリーン株式会社内

(72)発明者 清水 雅彦
神奈川県横浜市金沢区福浦一丁目1番地の
1 株式会社パワーシステム内